

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
15. April 2004 (15.04.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/030817 A3(51) Internationale Patentklassifikation⁷: B01J 29/04,
37/08, B01D 53/94

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/010788

(22) Internationales Anmeldedatum:
29. September 2003 (29.09.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
102 45 963.0 30. September 2002 (30.09.2002) DE(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): IKO MINERALS GMBH [DE/DE]; schmielenfeld-
strasse 78, 45772 Marl (DE).

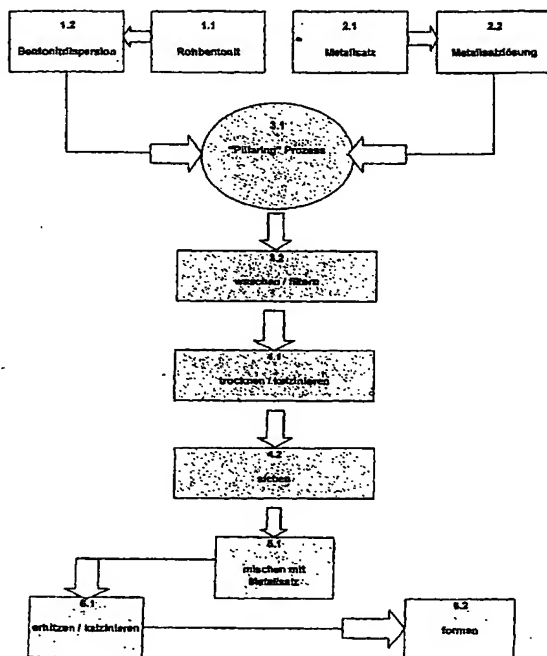
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KOCH, Dietrich
[DE/DE]; Rheinlandstrasse 22, 45665 Recklinghausen
(DE). KESORE, Kisanaduth [MU/DE]; Ringerottstrasse
67, 45772 Marl (DE). TOMLINSON, A.A.G. [IT/IT]; Via
Salaria KM29.5 C.P.10, 00016 Monterotondo-Staz (IT).(74) Anwalt: ANDREJEWSKI, HONKE & SOZIEN; The-
aterplatz 3, 45127 Essen (DE).(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,
CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH,
GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC,
LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW,
MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE,
SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR THE PRODUCTION OF CATALYTICALLY ACTIVE LAYER SILICATES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON KATALYTISCH WIRKENDE SCHICHTSILIKATEN



- | | |
|---------------------------|-------------------------------|
| 1.1. raw bentonite | 4.1. drying/calcining |
| 1.2. bentonite dispersion | 4.2. sieving |
| 2.1. metal salt | 5.1. admixing with metal salt |
| 2.2. metal salt solution | 6.1. heating/calcining |
| 3.1. pillering process | 6.2. forming |
| 3.2. washing/filtering | |

(57) Abstract: The invention relates to a method for the production of catalytically active layer silicates with one or more intermediate layers, especially Al and/or Ti-pillared clays, wherein a metal solution is added to the layer silicate and the mixture is dried, thereby producing metal atom columns supporting the corresponding intermediate layer. A metal salt is admixed dry to the resulting dry substance. The ensuing dry mixture is finally heated so that the metal atoms or the transition metal atoms become deposited in the intermediate layer.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von katalytisch wirkenden Schichtsilikaten mit einer oder mehreren Zwischenschichten, insbesondere Al- und/oder Ti-pillared clays. Dabei wird dem Schichtsilikat eine Metalllösung hinzugefügt und dann das Gemisch unter Erzeugung von die jeweilige Zwischenschicht stützenden Metallatompfeilern getrocknet. Im Anschluss daran wird zu der solchermassen entstandenen Trockensubstanz ein Metallsalz trocken hinzugegemischt. Die sich einstellende Trockenmischung wird abschliessend erhitzt, so dass die Metallatome bzw. Übergangsmetallatome in der Zwischenschicht einlagern.



(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

— vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

(88) **Veröffentlichungsdatum des internationalen**

Recherchenberichts:

1. Juli 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

P 03/10788

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J29/04 B01J37/08 B01D53/94

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J B01D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, COMPENDEX, INSPEC, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	LI, W. ET AL.: "Selective catalytic reduction of nitric oxide by ethylene in the presence of oxygen over Cu ²⁺ ion-exchanged pillared clays" APPLIED CATALYSIS B: ENVIRONMENTAL, vol. 11, 1997, pages 347-363, XP002277190 abstract "Introduction" " Conclusion"	1-15
X	YANG, R. T.; LI, W: "Ion-Exchanged Pillared Clays: A New Class of Catalysts for Selective Catalytic Reduction of NO by Hydrocarbons and by Ammonia" JOURNAL OF CATALYSIS, vol. 155, 1995, pages 414-417, XP002277191 the whole document --- -/--	1-15



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the International filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

22 April 2004

Date of mailing of the International search report

10/05/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Veefkind, V

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/JP 03/10788

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>SADYKOV VLADISLAV A ET AL: "Nanocomposites based upon alumina and zirconia pillared clays loaded with transition metal cations and clusters of precious metals: synthesis, properties and catalysis of NOx selective reduction by hydrocarbons" THE 1999 MRS FALL MEETING - SYMPOSIUM F 'NANOPHASE AND NANOCOMPOSITE MATERIALS III'; BOSTON, MA, USA NOV 29-DEC 2 1999, vol. 581, 29 November 1999 (1999-11-29), pages 435-440, XP008029911 Mater Res Soc Symp Proc; Materials Research Society Symposium - Proceedings 2000 Materials Research Society, Warrendale, PA, USA the whole document</p>	1-15
A	<p>CROCKER M. ET AL.: "Preparation of acidic forms of montmorillonite clay via solid-state ion-exchange reactions" CATALYSIS LETTERS, vol. 15, 1992, pages 339-345, XP002277192 the whole document</p>	1-13
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 09, 30 September 1996 (1996-09-30) & JP 08 117597 A (BABCOCK HITACHI KK), 14 May 1996 (1996-05-14)</p>	14,15
A	<p>abstract</p>	1-13
P,X	<p>US 6 521 559 B1 (LONG RUIQIANG ET AL) 18 February 2003 (2003-02-18) the whole document</p>	14,15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/JP 03/10788

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 08117597	A	14-05-1996	NONE	
US 6521559	B1	18-02-2003	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

P 03/10788

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B01J29/04 B01J37/08 B01D53/94

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J B01D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, COMPENDEX, INSPEC, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	LI, W. ET AL.: "Selective catalytic reduction of nitric oxide by ethylene in the presence of oxygen over Cu ²⁺ ion-exchanged pillared clays" APPLIED CATALYSIS B: ENVIRONMENTAL, Bd. 11, 1997, Seiten 347-363, XP002277190 Zusammenfassung "Introduction" "Conclusion"	1-15
X	YANG, R. T.; LI, W.: "Ion-Exchanged Pillared Clays: A New Class of Catalysts for Selective Catalytic Reduction of NO by Hydrocarbons and by Ammonia" JOURNAL OF CATALYSIS, Bd. 155, 1995, Seiten 414-417, XP002277191 das ganze Dokument	1-15

-/-



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

22. April 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

10/05/2004

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Veefkind, V

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>SADYKOV VLADISLAV A ET AL: "Nanocomposites based upon alumina and zirconia pillared clays loaded with transition metal cations and clusters of precious metals: synthesis, properties and catalysis of NOx selective reduction by hydrocarbons" THE 1999 MRS FALL MEETING - SYMPOSIUM F 'NANOPHASE AND NANOCOMPOSITE MATERIALS III'; BOSTON, MA, USA NOV 29-DEC 2 1999, Bd. 581, 29. November 1999 (1999-11-29), Seiten 435-440, XP008029911 Mater Res Soc Symp Proc; Materials Research Society Symposium - Proceedings 2000 Materials Research Society, Warrendale, PA, USA das ganze Dokument</p>	1-15
A	<p>CROCKER M. ET AL.: "Preparation of acidic forms of montmorillonite clay via solid-state ion-exchange reactions" CATALYSIS LETTERS, Bd. 15, 1992, Seiten 339-345, XP002277192 das ganze Dokument</p>	1-13
X	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 09, 30. September 1996 (1996-09-30) & JP 08 117597 A (BABCOCK HITACHI KK), 14. Mai 1996 (1996-05-14)</p>	14,15
A	<p>Zusammenfassung</p>	1-13
P,X	<p>US 6 521 559 B1 (LONG RUIQIANG ET AL) 18. Februar 2003 (2003-02-18) das ganze Dokument</p>	14,15

BEST AVAILABLE COPY

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

P 03/10788

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 08117597	A	14-05-1996	KEINE	
US 6521559	B1	18-02-2003	KEINE	